

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2005 年10 月20 日 (20.10.2005)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2005/099010 A1

(51) 国際特許分類: H01M 8/02, C08G 63/91, C08J 5/22, H01B 1/06, H01M 8/10

(21) 国際出願番号: PCT/JP2005/006967

(22) 国際出願日: 2005 年4 月8 日 (08.04.2005)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願2004-114879 2004 年4 月9 日 (09.04.2004) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社サムスン横浜研究所 (SAMSUNG YOKOHAMA RESEARCH INSTITUTE) [JP/JP]; 〒2300027 神奈川県横浜市鶴見区菅沢町2-7 Kanagawa (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 伊藤 敬人 (ITO, Takahito) [JP/JP]; 〒5140008 三重県津市上浜町1515 三重大学工学部内 Mie (JP). 相原 雄一 (AIHARA, Yuichi) [JP/JP]; 〒2300027 神奈川県横浜市鶴見区菅沢町2-7 株式会社サムスン横浜研究所内 Kanagawa (JP).

(74) 代理人: 亀谷 美明 (KAMEYA, Yoshiaki); 〒1600004 東京都新宿区四谷3-1-3 第一富澤ビルはづき国際特許事務所 四谷オフィス Tokyo, 外 (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 国際調査報告書
- 補正書・説明書

補正されたクレーム・説明書の公開日: 2005 年12 月29 日

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: SOLID POLYMER ELECTROLYTE MEMBRANE, METHOD FOR PRODUCING SAME, AND SOLID POLYMER FUEL CELL

(54) 発明の名称: 固体高分子電解質膜, その製造方法及び固体高分子型燃料電池

(57) Abstract: A low-cost solid polymer electrolyte membrane for solid polymer fuel cells having heat resistance and excellent proton conductivity even under low moisture conditions can be produced by a simple chemical synthesis process using a low-cost raw material. Specifically disclosed is a solid polymer electrolyte membrane for solid polymer fuel cells which is mainly composed of a hyperbranched polymer having an acidic functional group such as a sulfonic acid group at the end of a side chain. Examples of such a hyperbranched polymer may include poly[bis(oligo-ethylene glycol)benzoate].

(57) 要約: 【課題】 安価な原料を用いて簡便な化学合成法により、耐熱性があり且つ低湿状態でも優れたプロトン伝導性を有する、固体高分子型燃料電池用の安価な固体高分子電解質膜を提供する。【解決手段】 本発明によれば、側鎖の末端にスルホン酸などの酸性官能基を有する高分岐ポリマーを主成分とする固体高分子型燃料電池用の固体高分子電解質膜が提供される。上記高分岐ポリマーとしては、例えば、ポリ〔ビス(オリゴエチレングリコール)ベンゾエート〕などがある。

WO 2005/099010 A1

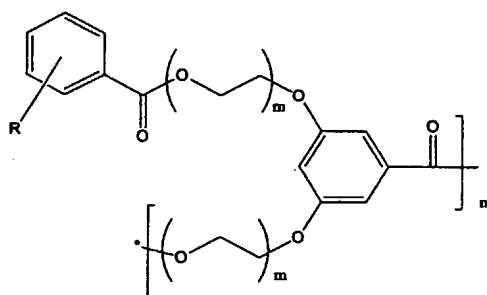
補正書の請求の範囲

[2005年10月3日(03.10.05)国際事務局受理：出願当初の請求の範囲1及び4は補正された；他の請求の範囲は変更なし。]

[1] (補正後) 側鎖の末端に酸性官能基を有し、且つ主鎖にオリゴエチレンオキシド構造を有する高分岐ポリマーを主成分とすることを特徴とする、固体高分子電解質膜。

[2] 前記高分岐ポリマーが、下記一般式1で表されるポリ〔ビス(オリゴエチレングリコール)ベンゾエート〕であることを特徴とする、請求項1に記載の固体高分子電解質膜。

[化1]



・・・ (一般式1)

[3] 前記ポリ〔ビス(オリゴエチレングリコール)ベンゾエート〕が、 $(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_m$ ($m = 1 \sim 6$) で表されるオリゴエチレンオキシド鎖と、ジオキシベンゾエートとから合成した A_2B 型モノマーを重合して得られる樹木状構造を有するポリマーであることを特徴とする、請求項1又は2に記載の固体高分子電解質膜。

[4] (補正後) 前記側鎖の末端に酸性官能基を有する高分岐ポリマーと、網目構造を有する架橋型ポリマーとの混合物を主成分とすることを特徴とする、固体高分子電解質膜。

[5] $(\text{CH}_2\text{CH}_2\text{O})_m$ ($m = 1 \sim 6$) で表されるオリゴエチレンオキシド鎖と、ジオキシベンゾエートを原料として合成した A_2B 型モノマーを重合させて、ポリ〔ビス(オリゴエチレングリコール)ベンゾエート〕を合成する第1工程と；

ポリ〔ビス(オリゴエチレングリコール)ベンゾエート〕の側鎖の末端に酸性官能基を導入する第2工程と；

を含むことを特徴とする、固体高分子電解質膜の製造方法。

[6] 前記第2工程において、前記側鎖の末端への酸性官能基の導入が、 o -, m -又は p -スルホ安息香酸またはジスルホ安息香酸のアルカリ金属塩により前記側

鎖の末端をエステル化した後、スルホン酸に変換することを特徴とする、請求項5に記載の固体高分子電解質膜の製造方法。

- [7] 前記第2工程において、前記側鎖の末端への酸性官能基の導入が、リン酸またはホスホン酸エステルを官能基として有する安息香酸化合物により前記側鎖の末端をエステル化した後、得られたリン酸エステルまたはホスホン酸エステルの加水分解により前記側鎖の末端を酸性官能基に変換することを特徴とする、請求項5に記載の固体高分子電解質膜の製造方法。

- [8] 請求項1～4のいずれか1項に記載の固体高分子電解質膜を備える、固体高分子型燃料電池。

条約第19条(1)に基づく説明書

本願に関連する引用文献として、Huan CHEN et al. (文献1)、JP10-340732 (文献2)が列挙されているが、固体高分子電解質膜において、側鎖の末端に酸性官能基を有し、且つ主鎖にオリゴエチレンオキシド構造を有する高分岐ポリマーを主成分とするという本願発明の特徴はまったく記載されておらず、当業者が本願発明に容易に想到しうるものではない。本願発明はすべて上記構成を特徴としており、したがってすべての請求の範囲に記載された発明に特許性があるものと確信する。